

2008 奥运和后奥运时段北京大气颗粒物质量浓度和数浓度比对研究

刘子锐, 孙扬, 李亮, 王跃思*

(中国科学院大气物理研究所 LAPC, 北京 100029)

摘要:为探索奥运和后奥运时段北京地区大气颗粒物质量浓度和数浓度变化规律及其主要影响因素,于 2008-08-08 ~ 2008-10-07 期间,在中国科学院大气物理研究所 325 m 气象观测塔附近的办公楼楼顶使用微量振荡天平 (TEOM) 和空气动力学粒谱仪 (APS) 在线实时测量颗粒物质量浓度和数浓度,同时结合地面气象资料和 HYSPLIT 轨迹模式对颗粒物的来源和传输过程进行了探讨. 结果表明,奥运期间北京大气颗粒物粗细粒子质量浓度 ($PM_{2.5-10}$ 和 $PM_{2.5}$) 平均值分别为 $(23.1 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $(55.5 \pm 7.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 比非奥运时期分别降低 18.2% 和 16.0%, 比非源控制时期分别降低 22.3% 和 18.0%; 而奥运期间粗细粒子数浓度 ($PN_{2.5-10}$ 和 $PN_{0.5-2.5}$) 平均值分别为 $(15 \pm 1) \text{个} \cdot \text{cm}^{-3}$ 和 $(3\,138 \pm 567) \text{个} \cdot \text{cm}^{-3}$, 比非奥运时期分别降低 23.4% 和 27.5%, 比非源控制时期分别降低 29.5% 和 34.3%. 观测期间风速、相对湿度和前 1 d 的降水与颗粒物质量浓度和数浓度存在显著线性关系,逐步回归分析结果显示,风速和相对湿度可以解释细粒子质量浓度和数浓度变化的 42% 和 53%, 而风速和前 1 d 的降雨则可以解释粗粒子质量浓度和数浓度变化的 21% 和 39%; 观测期间北京大气颗粒物主要受保定、石家庄等偏南地区输送的影响,偏南弱气流使北京大气细粒子质量浓度和数浓度迅速增加,而偏北强气流使区域大气粗细粒子得到彻底清除,体现了北京地区大气粗粒子受局地排放控制而细粒子受区域污染输送的特征. 对比观测期间颗粒物累积清除的 2 次典型过程发现,气象因素影响颗粒物浓度值波动,而局地源排放减少和区域输送减弱则使颗粒物粗细粒子浓度显著降低,北京及周边省(市、区)协同减排是保障奥运期间优质空气质量的主要原因.

关键词:大气颗粒物; 质量浓度; 数浓度; 区域减排; 气象因素

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2011)04-0913-11

Particle Mass Concentrations and Size Distribution During and After the Beijing Olympic Games

LIU Zi-rui, SUN Yang, LI Liang, WANG Yue-si

(LAPC, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China)

Abstract: To study the variance characteristics of particle mass and number concentration during and after the Beijing Olympic Games, on-line measurements of particle mass and number concentration were conducted on the rooftop of a two-story building near the 325 m meteorological observation tower in the courtyard of the Institute of Atmospheric Physics during 2008-08-08 - 2008-10-07 by using TEOM and APS. Sources and transportation of atmospheric particles during the experiment were discussed with surface meteorology data and backward trajectories calculated using HYSPLIT model. It had been found that the average mass concentration of $PM_{2.5-10}$ and $PM_{2.5}$ were $(23.1 \pm 1.6) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ and $(55.5 \pm 7.3) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ during the Olympic time, which were 18.2% and 16.0% lower than non-Olympic time, and 22.3% and 18.0% lower than non-Source control time. In Olympic time, average number concentration of $PN_{2.5-10}$ and $PN_{0.5-2.5}$ were $(15 \pm 1) \text{cm}^{-3}$ and $(3\,138 \pm 567) \text{cm}^{-3}$, which were 23.4% and 27.5% lower than non-Olympic time, and 29.5% and 34.3% lower than non-Source control time. According to the correlation analysis result of particle matter and meteorological factors, there were significant linear relationships between wind speed, relative humidity and precipitation of prior day and particle mass and number concentrations, stepwise regression analysis showed that 42% and 53% of the variance in mass and number concentration of fine particle were both accounted for wind speed and relative humidity, while 21% and 39% of the variance in mass and number concentration of coarse particle were both accounted for wind speed and precipitation of prior day. For the entire period, 46% of total air masses came from regions south of Beijing like Baoding and Shijiazhuang and were favor to increase both the mass and number concentration of fine particles, whereas air masses transported from the north and near north regions had a great effect on scavenging both fine and coarse particles in Beijing, indicating coarse particles mostly came from local sources and fine particles mainly influenced by regional transport in Beijing. According to the comparative analysis result of two accumulation-diffusion processes, meteorological factors were only the causes of particle mass and number fluctuations, while the significant decrease of coarse and fine

收稿日期: 2010-04-14; 修订日期: 2010-06-30

基金项目: 中国科学院知识创新工程重大项目 (KZCX1-YW-06-01); 国家重点基础研究发展规划 (973) 项目 (2007CB407303); 国家高技术研究发展计划 (863) 项目 (2006AA06A301)

作者简介: 刘子锐 (1982 ~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为大气化学, E-mail: lizr@dq.cern.ac.cn

* 通讯联系人, E-mail: wys@dq.cern.ac.cn

particles concentrations were mainly contributed to weaker emission of particles from local sources and weaker transport from regional area around Beijing, suggesting synchronous emission abatement of six provinces and cities of North China is the main factor that ensured the excellent air quality during the Olympic Games.

Key words: particulate matter; mass concentration; number concentration; regional emission abatement; meteorological factor

大气颗粒物是影响城市大气环境质量的重要污染物,其环境效应包括影响人体健康;通过直接或间接散射太阳辐射,影响地面的能量收支平衡;作为各种光化学反应的载体,促进城市大气光化学反应的发生;降低大气能见度. 颗粒物在大气环境中的行为与颗粒物的质量浓度、化学组成和粒径分布等有关^[1]. 近年来根据北京市环保局公告,北京大气 PM_{10} (空气动力学直径 $<10\ \mu m$)呈逐年下降趋势^[2],但同时期北京大气能见度并没有好转,反而逐年降低^[3],人们直观感觉灰霾天气越来越多,造成这一现象的原因可能与北京细粒子污染依然严重有关. 有报道称在珠江三角洲观测的结果以及少量的北京地区观测结果显示北京和珠江三角洲灰霾天气的出现与细粒子污染有关^[4-6]. 目前环保部门仅对 PM_{10} 进行监测,有可能不能完全表征大气颗粒物污染的程度,因此有必要对 $PM_{2.5}$ (空气动力学直径 $<2.5\ \mu m$)以及颗粒物的数浓度进行观测研究,从而更好地了解大气环境质量. 北京城区夏季光化学反应活跃,大气氧化性强,有利于二次粒子如硫酸盐、硝酸盐和铵盐等的生成,从而容易造成细粒子污染^[7,8],同时2008年夏季也是北京奥运会的主办时间,奥运前后北京及周边六省(市、区)实施了协同减排措施,以切实保障北京空气质量,因此深入研究北京夏季大气颗粒物质量浓度和数浓度变化特征及其影响因素,对于了解北京夏季颗粒物的变化规律以及颗粒物的累积清除机制具有重要的意义,同时正确评价奥运期间污染控制措施对北京大气颗粒物质量浓度和数浓度的影响可以为北京市政府今后制定相应的污染控制措施提供必要的科学依据.

本研究采用实时在线大气颗粒物质量浓度和数谱浓度分析仪,高时间分辨率(5 min)测定 $PM_{2.5}$ 和 $PM_{2.5-10}$ (空气动力学直径 $<10\ \mu m$, $>2.5\ \mu m$)以及 $0.5\sim20.0\ \mu m$ 粒径范围的大气颗粒物数浓度,分析了2008-08-08~2008-10-07北京大气颗粒物的质量浓度和数浓度变化特征,通过比较源与非源控制时期颗粒物质量浓度和数浓度差异并结合典型污染过程,分析探讨气象因素和污染源控制措施对颗粒物质量和数浓度的影响.

1 材料与方法

1.1 观测地点与时间

观测地点位于中国科学院大气物理研究所(116°22'E, 39°58'N)325 m气象观测塔东60 m的办公楼二楼楼顶,距地面约10 m. 该采样点介于北京三环路和四环路之间,距北三环路1 km,其北侧150 m是城市交通主干道北土城西路,东距八达岭高速公路200 m. 位于北京奥运会主场馆“鸟巢”的西南方向,直线距离约400 m. 采样时间为2008-08-08~2008-10-07.

1.2 观测方法

大气颗粒物粒径谱测量采用美国TSI公司生产的空气动力学粒径谱仪(TSI3321),测量粒径为 $0.5\sim20.0\ \mu m$,其原理基于飞行时间气溶胶粒子束光谱技术,即让气溶胶中的颗粒物形成粒子束,当粒子束由空气动力学喷嘴进入真空腔时发生真空膨胀,悬浮在气体中的颗粒物空气动力学粒径与该颗粒物动力碰撞传输的变化有关,因此颗粒物的粒径与颗粒物真空膨胀后的速度一一对应,只要获得了颗粒物的速度信息,就可以反演出颗粒物的空气动力学粒径信息. TSI3321的空气动力学粒径分辨率为每十进制32个通道,总通道数52个. 采样流量为 $5\ L\cdot min^{-1}$,气路流量为 $1\ L\cdot min^{-1}$,鞘气流量为 $4\ L\cdot min^{-1}$. 大气颗粒物质量浓度 $PM_{2.5-10}$ 和 $PM_{2.5}$ 使用美国Rupprecht & Patashnik公司生产的双通道rp1405DF进行同步测量,该仪器最低检测限为 $0.06\ \mu g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$,质量分辨率为 $0.10\ \mu g\cdot m^{-3}$,精度为 $\pm 1.50\ \mu g\cdot(m^3\cdot h)^{-1}$. 同时利用芬兰Vaisala公司生产的Milos520自动气象站对研究时段的气象参数(风向、风速、温度、湿度和降水)进行了同步观测. 文中使用的石家庄站数据在观测方法和时间上与北京一致,观测地点设在石家庄中国科学院遗传与发育生物学研究所办公楼5楼楼顶.

1.3 气流轨迹分析

利用美国海洋与大气管理局(NOAA)空气资源实验室(ARL)提供的混合型单粒子拉格朗日综合轨迹模式(HYSPLIT)^[9]和NCEP GDAS数据计算每日到达北京气团的后向轨迹. 每日每隔4 h计算1次用于整个观测期分析,包括每日起止时间,后推时间为96 h,起始高度为500 m;典型污染过程分析时每日每隔1 h计算1次,包括每日起止时间,后推时间为96 h,起始高度为500 m. 对后向轨迹进行聚类

分析 (K-Means) 判断气团的主要来源和途径区域^[10,11].

2 结果与讨论

为了区分颗粒物的不同来源及其环境影响,同时便于颗粒物的质量浓度与数浓度进行比较分析,本研究将监测粒径段粒子统一为粗粒子(2.5~10 μm)和细粒子(<2.5 μm)2类进行讨论.粗粒子质量浓度和数浓度分别以 PM_{2.5-10}和 PN_{2.5-10}表示,而细粒子则分别以 PM_{2.5}和 PN_{0.5-2.5}表示.

2.1 奥运与非奥运时期颗粒物质量浓度和数浓度比较

图 1 显示了观测期间颗粒物质量和数量浓度日

均值变化特征.细粒子数浓度波动幅度较大,日最大和最小均值分别为16 120个·cm⁻³和101 个·cm⁻³,前者是后者的近 160 倍;而粗粒子数浓度波动较小,日最大和最小均值分别为54 个·cm⁻³和4 个·cm⁻³.粗细2种粒子质量浓度波动幅度相近,观测期间细粒子日最大和最小均值分别为186.8 μg·m⁻³和10.2 μg·m⁻³,而粗粒子日最大和最小均值分别为66.6 μg·m⁻³和3.3 μg·m⁻³,最大值是最小值的约20 倍.从图1中可以看出观测期间北京地区颗粒物出现2次明显的累积清除污染过程,分别是8月25日~8月30日以及9月26日~10月3日,而9月21日前后颗粒物质量浓度和数浓度的异常升高可能与北京及周边地区污染源控制措施解除有关.

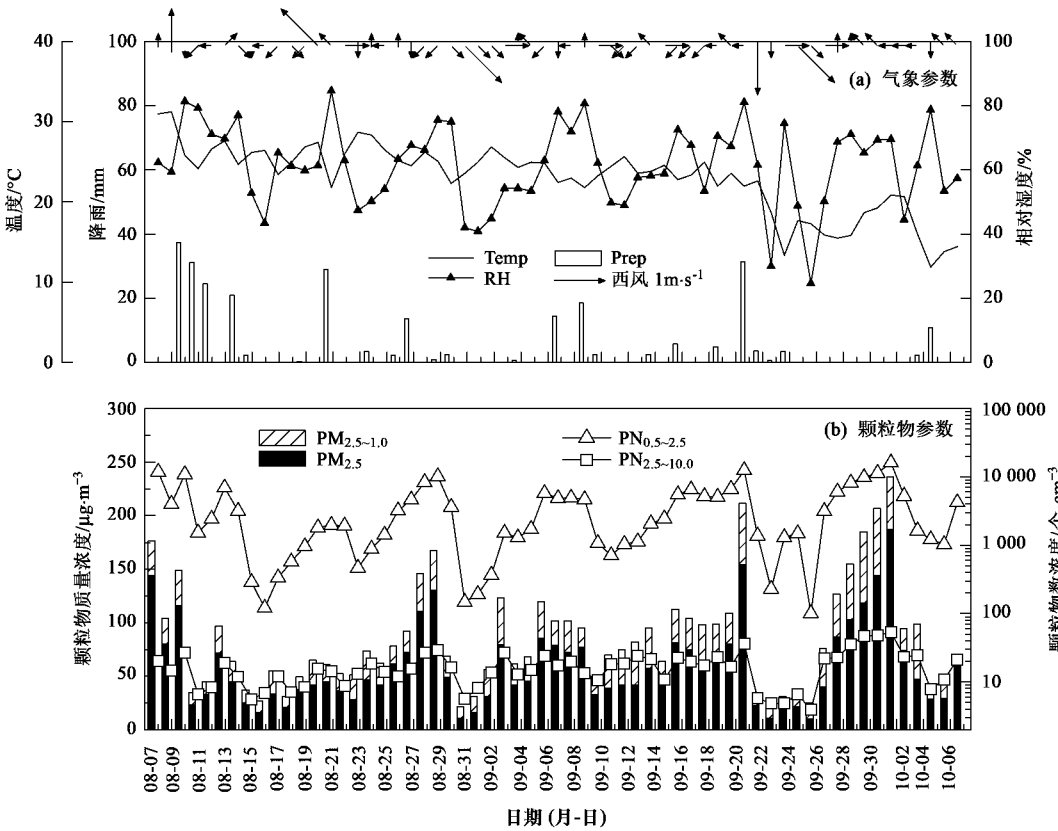


图 1 观测期间气象参数和颗粒物质量浓度和数浓度日平均统计值变化趋势

Fig. 1 Temporal variation of meteorological parameters and particle mass and number concentrations

为了比较奥运时期(8月8~24日及9月6~17日)与非奥运时期(观测期间除奥运时期的其它时期)颗粒物质量浓度和数浓度的差异,本研究对2个时期颗粒物的质量浓度和数浓度进行了统计分析.考虑到2个时期降水事件和空气相对湿度的差异,本研究计算颗粒物质量浓度和数浓度日均值时剔除了相对湿度>90%的小时数据.如表1所示,

奥运期间粗粒子的质量浓度和数浓度平均值(±标准误)分别为(23.1±1.6) μg·m⁻³和(15±1) 个·cm⁻³,而细粒子的质量浓度和数浓度平均值分别为(54.1±5.5) μg·m⁻³和(3 138±567) 个·cm⁻³,相比较非奥运时期,奥运时期粗粒子的质量浓度和数浓度均有显著性降低($p < 0.01$),分别降低18.2%和23.4%;而细粒子的质量浓度和数浓

度分别降低 16.0% 和 27.5%,但降低程度并未达到显著性水平. 2 个时期 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 并无显著性差异, 分别为 0.68 和 0.67. 之前的研究表明北京夏季 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 约为 0.60^[7,8,12], 低于本研究结果, 表明北京大气颗粒物中细粒子的比例在增加, 组成成分发生变化. 当 $PM_{2.5}/PM_{10} > 0.60$ 时, 城市大气颗粒

物的主要成分一般为 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 和 NH_4^+ 以及二次有机物, 而当 $PM_{2.5}/PM_{10} < 0.60$ 时, 道路扬尘和建筑扬尘是城市大气颗粒物的主要来源^[13]. 尽管奥运时期颗粒物的质量浓度和数浓度相比于非奥运时期均有显著降低, 但相近的 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 表明 2 个时期颗粒物的主要来源相同, 均主要来自燃烧源^[14].

表 1 奥运与非奥运时期颗粒物质量浓度与数浓度日均值比较及 *t*-检验结果

Table 1 PM daily average mass and number concentration during the Olympic and non-Olympic periods, *t*-test results, and the reduction in the PM mass and number concentration

项目	奥运时期 (<i>n</i> = 28)			非奥运时期 (<i>n</i> = 33)			<i>t</i> -检验 (<i>p</i>)	下降度	
	均值 (标准误)	最小值	最大值	均值 (标准误)	最小值	最大值		浓度	百分数/%
$PN_{0.5-2.5}/cm^{-3}$	3 138 (567)	121	11 893	4 330 (734)	101	16 120	0.102	1 192	27.5
$PN_{2.5-10.0}/cm^{-3}$	15 (1)	6	27	20 (2)	4	54	0.002	5	23.4
$PM_{2.5}/\mu g \cdot m^{-3}$	54.1 (5.5)	16.2	144.2	64.4 (8.0)	10.2	186.8	0.054	10.3	16.0
$PM_{2.5-10}/\mu g \cdot m^{-3}$	23.1 (1.6)	9.8	40.4	28.3 (3.1)	3.3	66.6	<0.001	5.1	18.2
$PM_{10}/\mu g \cdot m^{-3}$	77.2 (6.6)	27.0	176.3	92.7 (10.6)	21.5	235.9	0.014	15.5	16.7
$PM_{2.5}/PM_{10}$	0.68 (0.01)	0.51	0.82	0.67 (0.02)	0.41	0.95	0.121	-0.01	-2.1

2008 年北京奥运期间 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 的平均值分别为 $(54.1 \pm 5.5) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(77.2 \pm 6.6) \mu g \cdot m^{-3}$ (表 1). $PM_{2.5}$ 超过美国环境保护署 (USEPA) 2007 年颁布的标准 (日均限值 $35 \mu g \cdot m^{-3}$) 的天数为 20 d, 占到奥运总天数的 71%, 表明奥运期间大多数天仍出现细粒子污染, 鉴于细粒子对人体健康的危害远甚于粗粒子, 我国应尽快颁布细粒子的环境空气质量标准. 参照国家环保局 1996 年颁布的空气质量标准, 奥运期间 PM_{10} 仅有 1 d 超过空气二级标准值 ($150 \mu g \cdot m^{-3}$), 表现出轻微污染, 其它时间空气质量优良, 其中空气质量为优的天数为 12 d, 占到奥运总天数的近一半. 从总体上看, 北京 2008 年夏季奥运会实现了北京奥组委“绿色奥运”的承诺. 对比 2008 年奥运会前 1 a 和后 1 a 同时期北京市空气质量, 2007 年同时期 PM_{10} 的超标天数为 7 d, 空气质量为优的天数是零; 而 2009 年同时期 PM_{10} 的超标天数和空气质量为优的天数均为 4 d^[15], 这些结果体现了 2008 年奥运会前后污染控制措施的效果.

2.2 源控制与非源控制时期颗粒物质量浓度和数浓度比较

为了评价源控制措施对颗粒物质量浓度和数浓度的影响, 本研究将观测期间分为源控制时期 (SCT: 8 月 8 日 ~ 9 月 20 日) 和非源控制时期 (NSCT: 9 月 21 日 ~ 10 月 7 日) 进行讨论. 同样考虑到 2 个时期降水事件和空气相对湿度的差异, 本研究计算颗粒物质量浓度和数浓度日均值时剔除了相对湿度 > 90% 的小时数据. 如表 2 所示, 源控制期间和非源控制时期粗粒子的质量浓度日平均值分

别为 $(23.9 \pm 1.4) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(30.8 \pm 1.4) \mu g \cdot m^{-3}$, 数浓度日均值分别为 $(16 \pm 1) \text{个} \cdot cm^{-3}$ 和 $(22 \pm 4) \text{个} \cdot cm^{-3}$; 而细粒子质量浓度日平均值分别为 $(56.1 \pm 4.6) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(68.4 \pm 13.4) \mu g \cdot m^{-3}$, 数浓度日均值分别为 $(3\,286 \pm 458) \text{个} \cdot cm^{-3}$ 和 $(4\,999 \pm 1\,191) \text{个} \cdot cm^{-3}$. 相较于非源控制时期, 粗细粒子的质量浓度和数浓度均有显著性降低 ($p < 0.01$). 粗粒子的质量浓度和数浓度分别降低 22.3% 和 29.5%, 而细粒子的质量浓度和数浓度分别降低 18.0% 和 34.3%, 并且粗细粒子质量浓度和数浓度的最大值均出现在非源控制时期. 比较粗细粒子浓度降低的程度, 粗粒子质量浓度降低得更多, 而细粒子数浓度降低得更多. 联合国环境规划署 (UNEP) 公布的一份关于 2008 年北京奥运会环境评估报告指出源控制时期北京 PM_{10} 质量浓度降低了 20.0%^[16], 与本研究 PM_{10} 下降 19.3% 的结果非常接近 (表 2).

图 2 显示了 2000 ~ 2009 年的 8 ~ 10 月 PM_{10} 月均值 (由空气污染指数换算而得) 变化趋势, 从中可以看出, 除 2008 年外, 近 10 年来 8 月和 9 月 PM_{10} 月均值变化幅度较小, 这 2 个月平均值分别为 $(118.8 \pm 13.3) \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $(134.6 \pm 8.5) \mu g \cdot m^{-3}$, 而 2008 年 8 月和 9 月 PM_{10} 是近 10 年来颗粒物质量浓度最低的 2 个月, 分别为 $69.9 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $68.3 \mu g \cdot m^{-3}$, 同比分别减少了 41.1% 和 49.2%; 近 10 年来 10 月 PM_{10} 月均值呈逐年下降趋势, 2007 ~ 2009 年的 10 月 PM_{10} 质量浓度变化较为稳定. 与奥运会前后 1 a (2007 和 2009) 同月月均值的平均值相比, 2008 年

表 2 源控制时期与非源控制时期颗粒物质量浓度与数浓度日均值比较及 *t*-检验结果

Table 2 PM daily average mass and number concentration during the source control and non-source control periods , <i>t</i> -test results , and the reduction in the PM mass and number concentration									
项目	源控制时期 (<i>n</i> = 44)			非源控制时期 (<i>n</i> = 17)			<i>t</i> -检验 (<i>p</i>)	下降度	
	均值 (标准误)	最小值	最大值	均值 (标准误)	最小值	最大值		浓度	百分数/%
PN _{0.5~2.5} /cm ⁻³	3 286 (458)	121	11 893	4 999 (1191)	101	16 120	0.008	1 713	34.3
PN _{2.5~10.0} /cm ⁻³	16 (1)	6	29	22 (4)	4	54	<0.001	7	29.5
PM _{2.5} /μg·m ⁻³	56.1 (4.6)	10.6	144.2	68.4 (13.4)	10.2	186.8	0.001	12.3	18.0
PM _{2.5~10} /μg·m ⁻³	23.9 (1.4)	9.8	43.3	30.8 (5.4)	3.3	66.6	<0.001	6.9	22.3
PM ₁₀ /μg·m ⁻³	80.0 (5.5)	21.4	176.3	99.2 (17.9)	22.0	235.9	<0.001	19.2	19.5
PM _{2.5} /PM ₁₀	0.68 (0.01)	0.49	0.82	0.67 (0.03)	0.41	0.95	0.03	-0.02	-2.3

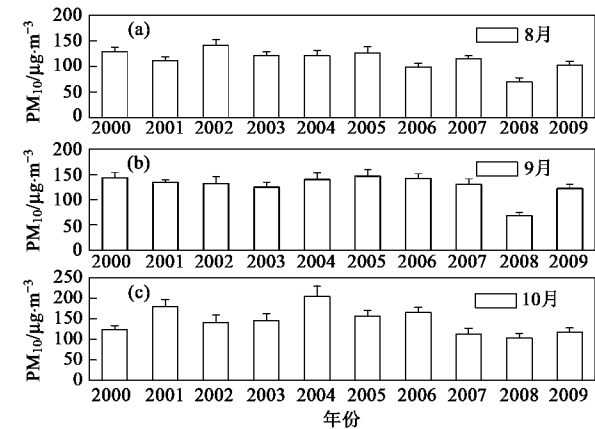


图 2 2000 ~ 2009 年 8 ~ 10 月北京市 PM₁₀月均值
Fig.2 Monthly PM₁₀ mass concentration of August,
September and October, 2000-2009, Beijing

奥运期间实施源控制措施的 8 月和 9 月 PM₁₀月均值分别下降了 35.8% 和 45.6%,而没有实施源控制措施的 10 月 PM₁₀月均值仅下降 10.4%。

从上述结果可以看出,无论是年内不同时期比较还是年际间同时期比较,源控制阶段 PM₁₀质量浓度均有大幅度降低,而且从近 10 年来的结果看,10 年间 8 月和 9 月 PM₁₀质量浓度变化平稳,而 2008 年同时期 PM₁₀质量浓度出现跳跃式降低。2008 年 8 月和 9 月颗粒物质量浓度出现较于往年的异常低值一方面可能受气象因素(如降雨)的影响,另一方面也可能与奥运前后北京及周边六省(市、区)实施的源控制措施有关,本研究将对这两方面的影响做进一步的讨论。

2.3 气象因素影响

地面气象因素(如降雨等)影响大气颗粒物的积累、扩散和清除过程^[17,18],从而对颗粒物的质量浓度和数浓度变化产生重要的影响。本研究对 4 种常规地面气象参数(风速、降水、湿度和温度)与颗粒物质量浓度和数浓度的关系进行统计分析,以期

寻找它们之间的内在联系。对气象参数与颗粒物质量浓度和数浓度的简单相关性分析结果表明,风速与粗细粒子质量浓度和数浓度均为显著负相关关系(表 3),风速越大,大气扩散能力越强,显然导致颗粒物浓度降低;相关分析显示降雨对颗粒物质量浓度和数浓度无显著性影响,大气环境污染是区域性问题,区域性较强降水对颗粒物有明显湿清除作用,而 2 mm 以下降水没有清除作用^[19]。气象资料显示奥运期间北京未出现明显区域性较强降水,多为分布不均匀的阵性及局地降水,因此对区域污染影响较小;但是另一方面降水可使地表湿润,从而减少路面扬尘,相关分析显示前一天的降雨与粗粒子的质量浓度和数浓度呈显著负相关关系。空气相对湿度与细粒子质量浓度和数浓度呈显著正相关关系,而与粗粒子关系不显著。本研究监测的细粒子粒径范围为 0.5 ~ 2.5 μm,属于颗粒物积聚模态中的液滴模态,该粒径段粒子主要来自于小粒子的吸湿增长以及液相反应^[20],因此相对湿度的增加有利于小粒子的增长从而导致细粒子质量浓度和数浓度升高。观测期间空气温度与颗粒物的关系不显著。通过逐步回归分析表明,相对湿度和风速是影响细粒子浓度变化的主要气象参数,二者可解释细粒子质量浓度和数浓度变化的近 50% (*p* = 0.002);而风速和前一天的降雨则是影响粗粒子浓度变化的主要气象参数。从表 4 可以看出,气象因素对细粒子浓度变化的影响程度大于粗粒子,这可能与粗细粒子来源不同有关。

2.4 颗粒物来源

为了探讨北京大气颗粒物的可能来源,对各个风向上颗粒物质量和数量的平均浓度进行了统计。结果表明,源控制时期观测点附近的主导风向为南风 and 东南风时,粗细粒子质量浓度和数浓度值较高;而观测点附近的主导风向为北风和西北风时,粗细粒子质量浓度和数浓度值均较低(图 3)。非源控制时期颗粒物质量浓度和数浓度随风向分布的结果与

表 3 颗粒物质量浓度和数浓度与气象参数(风速,降雨,相对湿度和温度)简单相关性分析¹⁾

Table 3 Spearman correlation coefficient between particle mass and number concentration and meteorological variables (wind speed, precipitation, relative humidity and temperature)

类型	项目	PN _{0.5~2.5}	PN _{2.5~10.0}	PM _{2.5}	PM _{2.5~10}	PM ₁₀
风速	SCT(<i>n</i> = 44)	-0.26	-0.20	-0.21	-0.24	-0.23
	NSCT(<i>n</i> = 17)	-0.48	-0.56 *	-0.48 *	-0.59 *	-0.54 *
	Total(<i>n</i> = 61)	-0.40 **	-0.45 **	-0.37 **	-0.47 **	-0.42 **
降雨	SCT(<i>n</i> = 44)	0.19	-0.05	0.09	-0.21	0.02
	NSCT(<i>n</i> = 17)	0.25	0.07	0.27	0.16	0.25
	Total(<i>n</i> = 61)	0.18	-0.02	0.12	-0.06	0.08
前一天降雨	SCT(<i>n</i> = 44)	-0.04	-0.32 *	-0.19	-0.33 *	-0.24 *
	NSCT(<i>n</i> = 17)	-0.32	-0.39	-0.34	-0.34	-0.36
	Total(<i>n</i> = 61)	-0.14	-0.31 *	-0.24	-0.30 *	-0.27 *
相对湿度	SCT(<i>n</i> = 44)	0.56 **	0.28	0.48 **	0.05	0.41 **
	NSCT(<i>n</i> = 17)	0.52 *	0.46	0.55 *	0.42	0.54 *
	Total(<i>n</i> = 61)	0.51 **	0.32 *	0.49 **	0.21	0.44 **
相对湿度(不包括 降雨天)	SCT(<i>n</i> = 44)	0.63 **	0.40 *	0.60 **	0.26	0.56 **
	NSCT(<i>n</i> = 17)	0.75 **	0.77 **	0.78 **	0.69 **	0.79 **
	Total(<i>n</i> = 61)	0.65 **	0.56 **	0.66 **	0.49 **	0.65 **
温度	SCT(<i>n</i> = 44)	0.08	-0.05	0.13	0.00	0.11
	NSCT(<i>n</i> = 17)	0.48 *	0.38	0.45	0.35	0.44
	Total(<i>n</i> = 61)	-0.02	-0.13	0.05	-0.07	0.01

1) * 表示 $p < 0.05$, ** 表示 $p < 0.01$

表 4 利用逐步回归分析气象参数对颗粒物
质量浓度和数浓度的影响程度

Table 4 Coefficients of linear regressions between particle mass
and number concentrations versus meteorological variables

$y^{1)}$	x	a	b	R^2	p	SEE
PN _{0.5~2.5} (<i>n</i> = 61)	相对湿度	2.02	0.03	0.53	0.002	0.37
	风速		-0.43			
PN _{2.5~10} (<i>n</i> = 61)	风速	0.97	-0.25	0.39	0.001	0.20
	相对湿度		0.01			
	前一天降雨		-0.01			
PM _{2.5} (<i>n</i> = 61)	相对湿度	1.15	0.01	0.42	0.002	0.22
	风速		-0.26			
PM _{2.5~10} (<i>n</i> = 61)	风速	1.67	-0.29	0.21	0.049	0.23
	前一天降雨		-0.01			

1) 回归方程为 $y = a + b \cdot x$, a 和 b 为数值平均值

源控制时期类似,但各个风向上粗细粒子质量浓度和数浓度值均有不同程度的升高,具体表现为粗粒子在东南和西南风向上质量浓度和数浓度值增长最多;而细粒子在东北和西南风向上质量浓度和数浓度值增长最多。上述结果表明北京地区颗粒物排放源存在空间分布差异,以实验观测点为中心,观测点东南以及西南方向颗粒物排放源较强,而北面的排放源较弱;同时源控制时期粗细粒子质量浓度和数浓度值的大幅度降低可能与东南和西南方向颗粒物源减弱有关。此外颗粒物质量浓度和数浓度在风向上显示“南高北低”的结果还与北京及近郊地区的地形有关,北京东、西、北三面环山,仅南面是平原,

因此当主导风向为南风且风速较低时,受大山的阻拦,城区上空气团无法扩散,却被挤压,使污染物浓度升高,而北风盛行时,污染物向南面扩散,空气质量好转,这在之前的研究中多有描述^[21,22]。

利用 Hysplit-4 传输、扩散模式进行空气质点轨迹模拟分析结果可追踪城市大气周边污染源分布及其影响过程^[23,24]。本研究利用 Hysplit-4 轨迹模式结合聚类分析追溯了观测期间颗粒物的可能源区,发现到达北京的高空气团可分为 5 个主要方向,它们分别途径了不同的区域,如图 4 所示。由图 4 可以看出,46% 的气流来自西南偏南方向,到达北京之前经过了河北石家庄、保定和廊坊等地,28% 的气流途径唐山和天津等地,来自西北方向的 2 股气流的比例分别为 13% 和 10%,途径的主要区域为内蒙古境内,另有 3% 的气团来自西北偏北方向的长距离输送,其源区可追溯至蒙古国境内。通过统计不同方向气流影响下颗粒物质量浓度的平均值发现(图 4),受西南偏南气流影响时,北京细粒子质量浓度最高,而西北 2 个方向以及东北偏东方向气流影响下细粒子质量浓度接近,均值约为偏南气流影响下的一半;上述 4 个方向气流影响下北京地区粗粒子的质量浓度均较接近。而受西北偏北长距离气团影响时,北京地区粗细粒子质量浓度均远低于其它 4 个方向,主要原因可能在于此气团来自相对清洁的内蒙古和蒙古国境内,本身携带的颗粒物浓度也

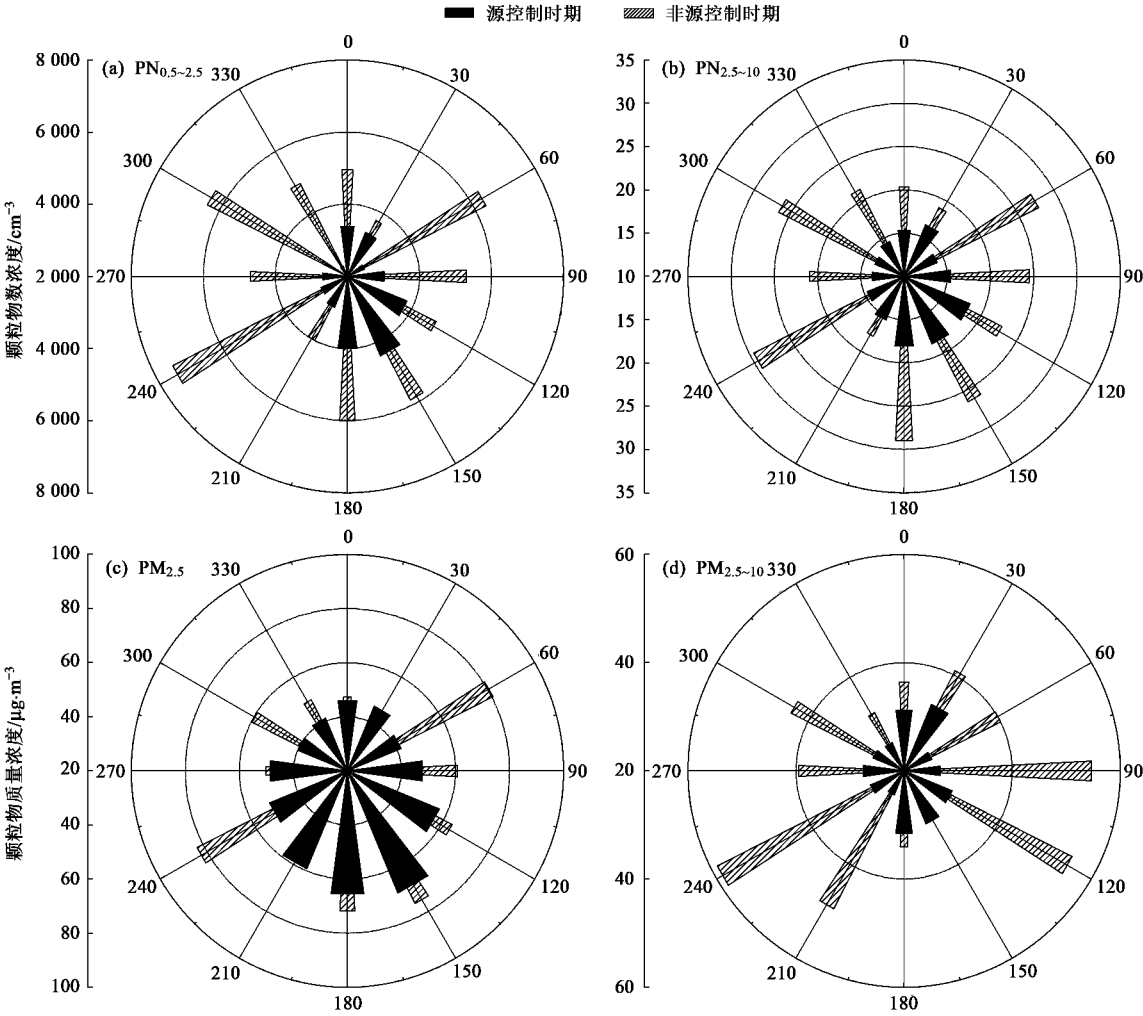


图 3 颗粒物质量浓度和数浓度在各个风向上的浓度统计

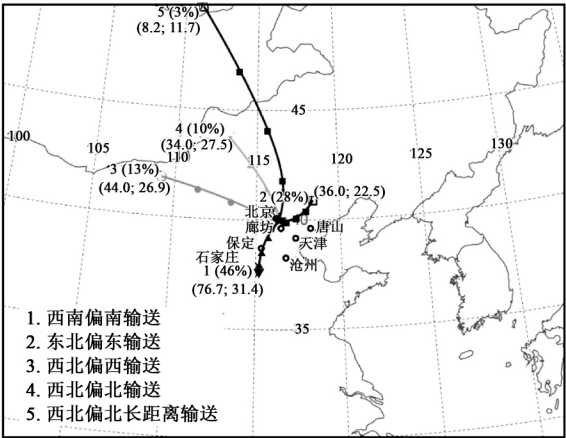
Fig. 3 Particle mass concentration and number concentration in each wind direction during source control time and non-source control time

较低,偏北清洁气团的加入稀释了北京地区的污染

空气,有利于颗粒物质量浓度的降低。以往的研究表明^[25],北京地区大气颗粒物不仅受局地源的影响,而且显著地受到北京偏南地区,特别是河北保定、石家庄和山东等地严重污染源的影响^[26,27],与本研究的结果一致;同时从气团对粗细粒子质量浓度变化影响的差异性来看,观测期间北京地区细粒子主要受京津冀地区尤其是北京偏南地区的气流输送的影响,而粗粒子主要受局地源排放的控制。

2.5 典型污染过程

从上述分析可知,属于局地源控制的粗粒子受气象因素的影响较小,因此奥运期间粗粒子质量浓度和数浓度的显著降低应该主要与奥运前后北京市政府实施的一系列控制措施有关,而观测期间北京地区细粒子主要受京津冀地区尤其是北京偏南地区气流输送的影响,同时气象因素对细粒子质量浓度和数浓度变化的影响也较大,风速和相对湿度可解



图中括号内数据分别为细粒子和粗粒子质量浓度

图 4 观测期间北京后向轨迹经过的区域示意

Fig. 4 Air mass backward trajectories from Aug 8 to Oct 7, 2008, Beijing

释细粒子浓度变化的近 50% (表 4), 因此奥运期间细粒子质量浓度和数浓度的显著降低一方面可能与北京及周边 6 省市实施的协同减排措施有关, 另一方面也可能与奥运期间有利的气象条件有关. 为了区分这两方面的影响, 本研究选取观测期间分别属于源控制和非源控制时期的 2 次污染过程, 评价相近天气条件源控制措施对颗粒物浓度的影响.

从图 1 中可以看出, 8 月 25 日~30 日以及 9 月 26 日~10 月 3 日北京地区分别出现 2 次典型的污染过程, 文中分别用过程 1 和过程 2 表示. 2 个污染过程 PM_{10} 分别超过国家二级标准 2 d 和 4 d, 而 $PM_{2.5}$ 则分别超过美国 EPA 标准 6 d 和 7 d. 图 5 显示了 8 月 27 日 00:00~8 月 30 日 23:00 以及 9 月 28 日 00:00~10 月 4 日 23:00 颗粒物从生成到清除的过程, 同时给出了地面风向的变化. 这 2 次污染过程地面气象条件变化特征相似, 开始前 4 d 均有一次较强降雨过程. 如图 1 所示, 8 月 21 日 24 h 的降雨量近 29 mm, 而 9 月 21 日 24 h 降雨量达到 31 mm. 强降雨的湿清除作用加上主导风向均为北风, 导致过程 1 和过程 2 开始前颗粒物的质量浓度和数

浓度值均较低. 进入颗粒物增长累积阶段, 2 个过程地面气象条件的共同特征表现为: 北京地区持续受到东南风以及偏南风影响, 偏南风出现频率分别为 38.2% 和 39.8%, 偏南气流的输送导致北京地区颗粒物开始累积, 同时累积阶段 2 个过程地面风速均较低, 平均风速分别为 $0.79\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 和 $0.54\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, 并且多次出现静风以及准静止风, 大气扩散能力较差, 受地形的影响, 颗粒物不断累积, 质量浓度和数浓度持续上升. 累积阶段 2 个过程 $PM_{2.5}$ 逐时变化曲线类似, 均由稳定增长的基线和叠加其上的日变化两部分组成 [图 5(b)], 属于区域污染过程 [28,29]. 对该阶段气团移动的后向轨迹进行模拟并结合聚类分析发现, 西南及偏南气团均占据了总气团的 70% 以上 [图 6(a) 和 6(b)], 表明过程 1 和过程 2 颗粒物的输送区域一致, 均位于北京的西南方向, 并且从图 5(b) 和 5(c) 可以看出, 2 个污染过程期间石家庄市 $PM_{2.5}$ 质量浓度变化趋势与北京市基本一致, 而粗粒子的变化趋势 2 个城市间则不一致. 进一步通过相关性分析表明, 2 个城市间 $PM_{2.5}$ 呈显著线性相关关系, 相关系数均为 0.64 (图 7), 而石

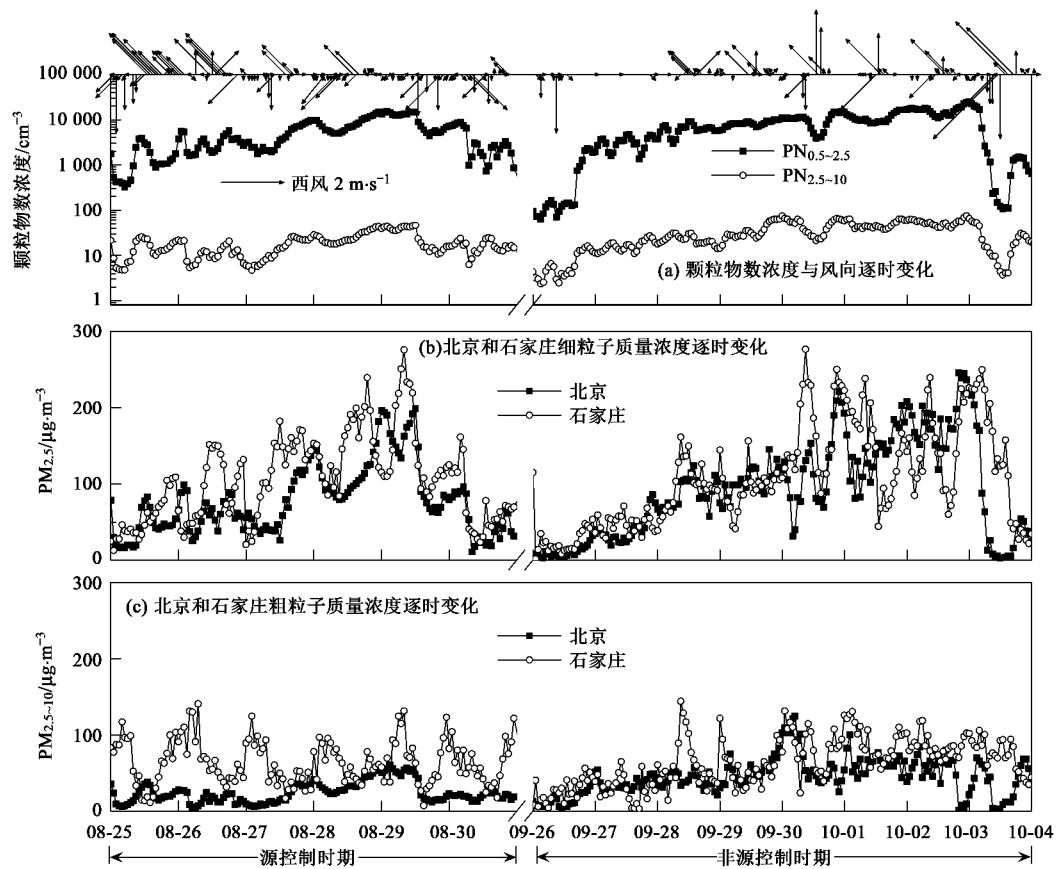


图 5 北京 8 月 25~30 日以及 9 月 26 日~10 月 3 日颗粒物浓度与风向变化

Fig. 5 Variation of particle mass and number concentrations and wind direction from Aug 25 to Aug 30 and from Sep 26 to Oct 3

家庄市 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度分别为北京市的约 1.9 倍和 1.6 倍,进一步说明北京地区细粒子受石家庄等西南重污染源的影响,而粗粒子则与局地源排放有关,与本研究对颗粒物来源分析的结果一致. 2 个过程的清除阶段地面主导风向均为对污染物扩散有利的北

风,东北风以及西北风,高空气团也分别来自于较为清洁地区的西北方向和较为洁净的海洋[图 6(c)和 6(d)],有利的大气扩散条件以及洁净气团的稀释作用使得颗粒物质量浓度和数浓度明显降低,分别在 8 月 39 日和 10 月 3 日达到谷值,污染过程结束.

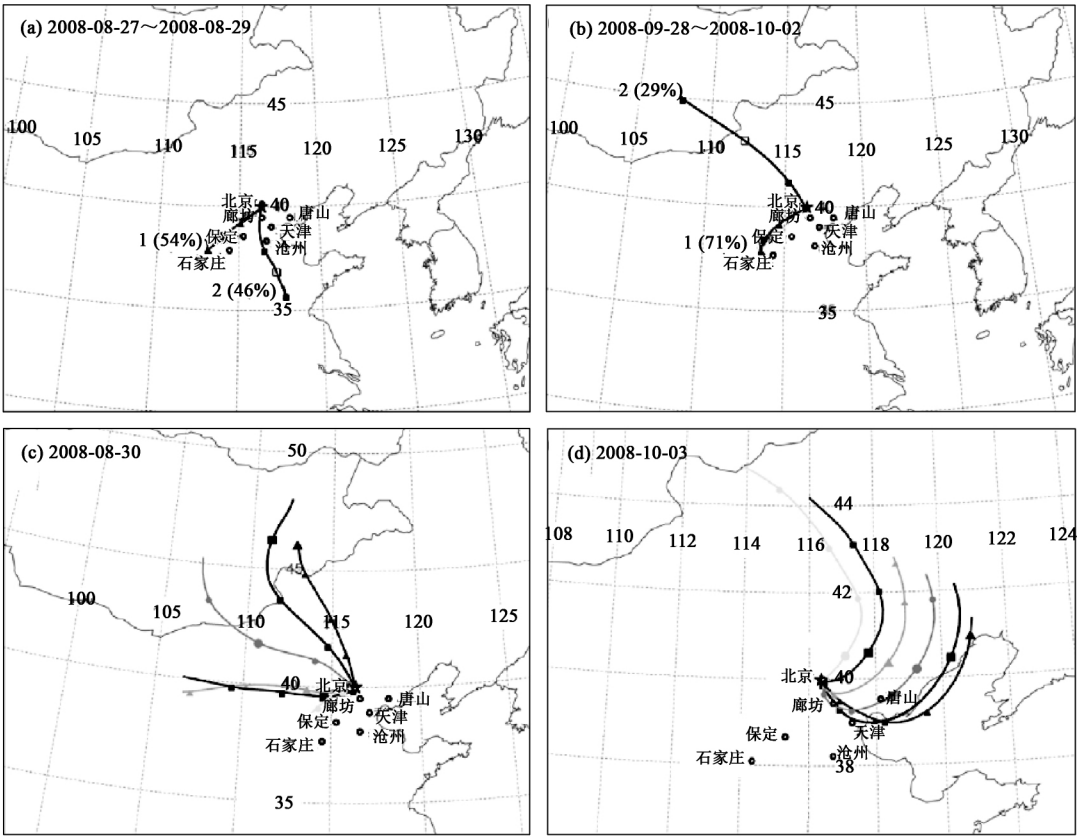


图 6 两次污染过程颗粒物累积以及清除阶段气团后向轨迹经过的区域示意

Fig. 6 Air mass backward trajectories during particle accumulation period and diffusion period in process 1 and process 2

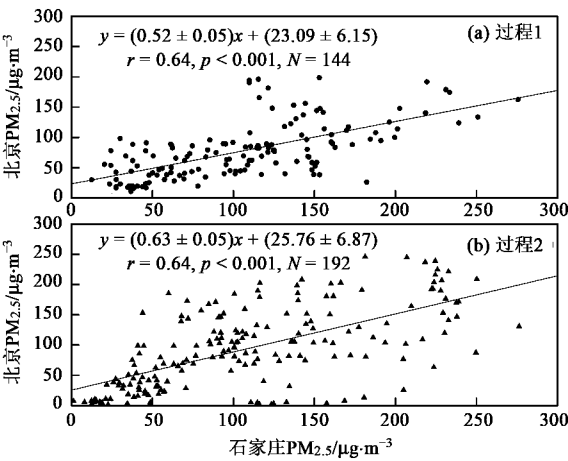


图 7 两次污染过程北京和石家庄 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度相关性分析
Fig. 7 Linear relationship between Beijing and Shijiazhuang of hourly average $\text{PM}_{2.5}$ in process 1 and process 2

表 5 显示了过程 1 和过程 2 颗粒物质量浓度和数浓度比较结果,从中可以看出,相比较过程 1,过程 2 颗粒物浓度显著上升,其中细粒子质量浓度和数浓度分别上升 17.5% 和 31.2%,而粗粒子比例上升更高,质量浓度和数浓度分别上升 59.7% 和 40.6%. 同样为污染过程,过程 1 的 $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 为 0.75,而过程 2 的则为 0.61,显著低于过程 1,过程 2 粗粒子在大气颗粒物中比例的显著上升表明源控制措施解除后颗粒物的主要贡献源发生改变. 以往的研究表明,北京大气中粗粒子的主要排放源有扬尘,交通源,燃煤源,建筑尘,生物质燃烧和工业无组织排放^[30,31],而夏季光化学反应活跃,有利于硫酸盐,硝酸盐,铵盐等二次粒子的生成,二次粒子在细粒子中的比例占 1/3 以上^[7,8],成为北京夏季细粒子的主要来源. 据报道^[32],奥运期间北京主要实行了 6

大措施以切实保障北京空气质量. 从本研究的结果来看,这些措施的实施在很大程度上降低了颗粒物的局地排放源,因而使得受局地源控制的粗粒子质量浓度和数浓度显著降低;而对于细粒子,从典型污染过程的分析结果看,气象因素影响颗粒物的累积清除过程,从而对颗粒物浓度变化产生重要影响,但

是过程 1 颗粒物的累积量显著低于过程 2,而污染物累积量受污染排放影响,由此推测源控制阶段北京及周边地区颗粒物排放量显著降低. 因此对于受区域污染影响的细粒子,奥运期间其浓度水平的显著降低与北京及周边六省(市、区)实施的协同减排措施有关.

表 5 过程 1 和过程 2 颗粒物质量浓度和数浓度小时均值比较及 *t*-检验结果

Table 5 PM hourly average mass and number concentration during process1 and process 2, <i>t</i> -test results, and the reduction in the PM mass and number concentration									
项目	过程 1 (<i>n</i> = 144)			过程 2 (<i>n</i> = 192)			<i>t</i> -检验 (<i>p</i>)	下降度	
	均值(标准误)	最小值	最大值	均值(标准误)	最小值	最大值		浓度	百分数/%
PN _{0.5~2.5} /cm ⁻³	5 201(335)	330	15 011	7 559(421)	64	24 825	<0.001	2 358	31.2
PN _{2.5~10.0} /cm ⁻³	19(1)	5	46	32(1)	2	75	<0.001	13	40.6
PM _{2.5} /μg·m ⁻³	77.3(3.8)	10.7	198.7	93.7(4.7)	1.9	245.6	0.01	16.4	17.5
PM _{2.5~10} /μg·m ⁻³	24.4(1.2)	4.9	60.5	44.6(1.7)	0.8	124.6	<0.001	36.1	59.7
PM ₁₀ /μg·m ⁻³	101.7(4.8)	22.6	246.8	138.3(5.6)	2.8	246.5	<0.001	36.6	26.5
PM _{2.5} /PM ₁₀	0.75(0.01)	0.44	0.89	0.61(0.01)	0.21	0.99	<0.001	0.14	15.7

3 结论

(1)2008 年奥运期间北京大气颗粒物粗细粒子质量浓度(PM_{2.5~10}和 PM_{2.5})平均值分别为(23.1 ± 1.6) μg·m⁻³和(55.5 ± 7.3) μg·m⁻³,粗细粒子数浓度(PN_{2.5~10}和 PN_{0.5~2.5})平均值分别为(15 ± 1) 个·cm⁻³和(3 138 ± 567) 个·cm⁻³,均明显低于观测期间其它时期.

(2)观测期间风速、相对湿度和前 1 d 的降雨对颗粒物质量和数浓度影响较大,风速和相对湿度可以解释细粒子质量浓度和数浓度变化的 42% 和 53%,而风速和前 1 d 的降雨可以解释粗粒子质量浓度和数浓度变化的 21% 和 39%. 偏南弱气流使北京大气细粒子质量浓度和数浓度迅速增加,而偏北强气流可使区域大气粗细粒子得到彻底清除.

(3)气象因素影响颗粒物浓度值波动,而颗粒物局地源排放减少和区域输送减弱则使粗细粒子质量浓度和数浓度显著降低,北京及周边六省(市、区)实施的协同减排措施是奥运期间大气颗粒物浓度显著降低的主要原因.

致谢:感谢刘广仁老师和张文老师等工作人员在实验过程中给予的帮助.

参考文献:

[1] Kocifaj M,Horvath H,Jovanovic O,*et al.* Optical properties of urban aerosols in the region Bratislava-ViennaI. Methods and tests [J]. Atmospheric Environment,2006,**40**(11):1922-1934.
[2] 任希岩,吉东生,王跃思,等. 北京大气细粒子及其成分的浓度变化特征[J]. 地球信息科学,2008,**4**(10):426-430.

[3] Zhang Q,Zhang J,Xue H. The challenge of improving visibility in Beijing [J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discuss., 2010,**10**:6199-6218.
[4] 吴兑,毕雪岩,邓雪娇,等. 珠江三角洲气溶胶云造成的严重灰霾天气[J]. 自然灾害学报,2006,**6**(15):77-83.
[5] 吴兑,毕雪岩,邓雪娇,等. 细粒子污染形成灰霾天气导致广州地区能见度下降[J]. 热带气象学报,2007,**23**(1):1-6.
[6] 宋宇,唐孝炎,方晨,等. 北京市能见度下降与颗粒物污染的关系[J]. 环境科学学报,2003,**23**(4):468-471.
[7] He K B,Yang F M,Ma Y L,*et al.* The characteristics of PM_{2.5} in Beijing,China [J]. Atmospheric Environment, 2001,**35**(29):4959-4970.
[8] 胡敏,赵云良,何凌燕,等. 北京冬、夏季颗粒物及其离子成分质量浓度谱分布[J]. 环境科学,2005,**26**(4):1-6.
[9] Draxler R R,Rolph G D. HYSPLIT (HYbrid Single - Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>) [EB/OL]. Silver Spring, MD: NOAA Air Resources Laboratory,2003.
[10] Tang G Q,Li X,Wang Y S,*et al.* Surface ozone trend details and interpretations in Beijing,2001-2006[J]. Atmospheric Chemistry and Physics,2009,**9**(22):8813-8823.
[11] 潘月鹏,王跃思,胡波,等. 北京奥运时段河北香河大气污染观测研究[J]. 环境科学,2010,**31**(1):1-9.
[12] Shi Z B,Shao L Y,Jones T P,*et al.* Characterization of airborne individual particles collected in an urban area,a satellite city and a clean air area in Beijing,2001[J]. Atmospheric Environment, 2003,**37**(29):4097-4108.
[13] Chan C K,Yao X. Air pollution in mega cities in China [J]. Atmospheric Environment,2008,**42**(1):1-42.
[14] Wang W T,Toby P,Tao S,*et al.* Atmospheric particulate matter pollution during the 2008 Beijing Olympics [J]. Environmental Science & Technology,2009,**43**(14):5314-5320.

[15] 中华人民共和国环境保护部. 中国城市质量日报[EB/OL].
<http://www.mep.gov.cn>.

[16] United Nations Environment Programme. Independent environmental assessment; Beijing 2008 Olympic Games [M]. Nairobi, Kenya: UNEP, 2009. 34-36.

[17] Pang X B, Mu Y J, Lee X Q. Influences of characteristic meteorological conditions on atmospheric carbonyls in Beijing, China[J]. Atmospheric Research, 2009, **93**(4):913-919.

[18] Pateraki S, Maggos T, Michopoulos J. Ions species size distribution in particulate matter associated with VOCs and meteorological conditions over an urban region [J]. Chemosphere, 2008, **72**(3):496-503.

[19] 胡婧,程水源,苏福庆. 北京奥运会及残奥会期间 PM₁₀ 质量浓度演变特征及成因[J]. 环境科学研究, 2009, **12**(22):1395-1402.

[20] John W, Wall S M, Ondo J L, *et al.* Models in the size distributions of atmospheric inorganic aerosol [J]. Atmospheric Environment, 1990, **24A**:2349-2359.

[21] 孙扬,王跃思,刘广仁. 北京地区一次大气环境持续严重污染过程中 SO₂ 的垂直分布分析[J]. 环境科学, 2006, **27**(3):408-414.

[22] 吉东升,王跃思,孙扬,等. 北京大气中 SO₂ 浓度变化特征[J]. 气候与环境研究, 2009, **14**(1):69-76.

[23] 徐祥德,周秀骥,施晓晖. 城市群落大气污染源影响的空间结构及尺度特征[J]. 中国科学 (D 辑), 2005, **35**(增刊I):1-19.

[24] Song Y, Miao W J, Liu B, *et al.* Identifying anthropogenic and natural influences on extreme pollution of respirable suspended particulates in Beijing using backward trajectory analysis [J]. Journal of Hazardous Materials, 2008, **154**(3):459-468.

[25] 丁国安,陈尊裕,高志球,等. 北京地区低层大气 PM₁₀ 和 PM_{2.5}垂直结构及其动力特征[J]. 中国科学 (D 辑), 2005, **35**(增刊 I):31-44.

[26] 徐祥德,周秀骥,翁永辉,等. 星载 MODIS 资料与地面光度计探测气溶胶变分场[J]. 科学通报, 2003, **48**(14):1680-1685.

[27] 徐祥德,周丽,周秀骥,等. 城市环境大气重污染过程周边源影响域[J]. 中国科学(D 辑), 2004, **34**(10):958-966.

[28] Jia Y, Rahn K A, He K, *et al.* A novel technique for quantifying the regional component of urban aerosol solely from its sawtooth cycles [J]. Journal of Geophysical Research, 2008, **113**, D21309, doi:10.1029/2008JD010389.

[29] 赵晴,贺克斌,马永亮,等. 北京及周边地区夏季大气颗粒物区域污染特征[J]. 环境科学, 2009, **30**(7):1873-1880.

[30] 唐孝炎. 北京市大气污染的成因和来源分析[R]. 北京:北京大学, 2002.

[31] 韩力慧,庄国顺,程水源,等. 北京地面扬尘的理化特性及其对大气颗粒物污染的影响[J]. 环境科学, 2009, **30**(1):1-8.

[32] 第 29 届奥林匹克运动会官方网站. 奥运会残奥会期间北京市实施六大环保措施确保空气质量[EB/OL]. 第 29 届奥林匹克运动会官方网站 (2008-04-14) [2009-03-22]. <http://www.beijing2008.cn/news/dynamics/headlines/n214306567.html>.